

⑩ 日本国特許庁 (J P)

⑪ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報 (A)

昭62-188184

⑬ Int. Cl.

識別記号

庁内整理番号

⑭ 公開 昭和62年(1987)8月17日

H.01 R 11/01
C 09 J 3/00
7/00

J A R
J H L

A-6625-5E
7102-4J
6770-4J

※審査請求 未請求 発明の数 3 (全19頁)

⑯ 発明の名称 異方導電性を有する回路接続用接着剤組成物および接着フィルム並びにこれらを用いた回路の接続方法

⑰ 特 願 昭61-31088

⑱ 出 願 昭61(1986)2月14日

⑲ 発 明 者 塚 越 功 下館市大字小川1500番地 日立化成工業株式会社下館研究所内

⑲ 発 明 者 山 口 豊 下館市大字小川1500番地 日立化成工業株式会社下館研究所内

⑲ 発 明 者 中 島 敦 夫 下館市大字小川1500番地 日立化成工業株式会社下館研究所内

⑳ 出 願 人 日立化成工業株式会社 東京都新宿区西新宿2丁目1番1号

㉑ 代 理 人 井理士 廣 瀬 章
最終頁に続く

明 細 書

1. 発明の名称

異方導電性を有する回路接続用接着剤組成物および接着フィルム並びにこれらを用いた回路の接続方法

2. 特許請求の範囲

1. 絶縁性の接着剤成分と導電性粒子とよりなる回路接続用の接着剤組成物において、以下 (i)、(ii) の条件を満足する導電性粒子を 0.1 ~ 1.5 体積% 含有することを特徴とする回路接続用接着剤組成物。
 - (i) 導電性粒子は高分子物質を核材としてそのほぼ全表面が導電性の金属薄層により被覆された 0.05 ~ 1.0 のアスペクト比と 0.5 ~ 300 μm の平均粒径を有し、
 - (ii) 接着剤成分に対する前記核材の熱膨張率の比が 0.5 ~ 1.5 であり、かつ弾性率の比が 1.2 ~ 0.01 であること。
2. 核材が加圧あるいは加熱加圧により塑性変形性を有するものである特許請求の範囲第 1

項記載の回路接続用接着剤組成物。

3. 核材の熱膨張率が 2.0×10^{-5} (1/℃) の値を有するものである特許請求の範囲第 1 項または第 2 項記載の回路接続用接着剤組成物。
4. 核材表面に形成された金属薄層の厚みが 0.01 ~ 5 μm であり、導電性粒子の粒径の $1/5 \sim 1/1000$ である特許請求の範囲第 1 項ないし第 3 項のいずれかに記載の回路接続用接着剤組成物。
5. 接着剤成分が感熱貼付性を有するものである特許請求の範囲第 1 項記載の回路接続用接着剤組成物。
6. 接着剤成分が感圧貼付性を有するものである特許請求の範囲第 1 項記載の回路接続用接着剤組成物。
7. 接着剤成分が熱硬化型および/または光硬化型である特許請求の範囲第 1 項または第 5 項または第 6 項記載の回路接続用接着剤組成物。

特開昭62-188184 (2)

8. 絶縁性の接着剤成分と導電性粒子とよりなる回路接続用の接着フィルムにおいて、以下
- (f)、(g)の条件を満足する導電性粒子を0.1～1.5体積%含有することを特徴とする回路接続用接着フィルム。
- (f) 導電性粒子は高分子物質を核材としてそのほぼ全表面が導電性の金属薄層により被覆された0.05～1.0のアスペクト比と0.5～300 μm の平均粒径を有し、
- (g) 接着剤成分に対する前記核材の熱膨張率の比が0.5～1.5であり、かつ弾性率の比が1.2～0.01であること。
9. 核材が加圧あるいは加熱加圧により塑性変形性を有するものである特許請求の範囲第8項記載の回路接続用接着フィルム。
10. 核材の熱膨張率が $20 \times 10^{-5} \sim 2 \times 10^{-5}$ ($1/^\circ\text{C}$)の値を有するものである特許請求の範囲第8項または第9項記載の回路接続用接着フィルム。
11. 核材表面に形成された金属薄層の厚みが0.

または第12項乃至第15項記載の回路接続用接着フィルム。

17. 加圧あるいは加熱加圧により塑性変形性を有する高分子核材のほぼ全表面を導電性の金属薄層により被覆した導電性粒子を、熱硬化型および/または光硬化型接着剤中に0.1～1.5体積分散させてなる接着剤組成物または接着フィルムを相対峙する電極回路間に介在せしめ、回路間の接着剤層厚みが初期厚みの0.02～0.95の範囲になるよう加圧あるいは加熱加圧することにより回路間の電気的接続と機械的結合をおこなうことを特徴とする回路の接続方法。
18. 接続および/または接続後に加熱および/または光照射することにより回路接続部を架橋硬化する特許請求の範囲第17項記載の回路の接続方法。
3. 発明の詳細な説明
(産業上の利用分野)
本発明は回路の接続に用いられる接着剤組成

0.1～5 μm であり、導電性粒子の粒径の $1/5 \sim 1/1000$ である特許請求の範囲第8項ないし第10項のいずれかに記載の回路接続用接着フィルム。

12. 接着剤成分が感熱貼付性を有するものである特許請求の範囲第8項記載の回路接続用接着フィルム。
13. 接着剤成分が感圧貼付性を有するものである特許請求の範囲第8項記載の回路接続用接着フィルム。
14. 接着剤成分が熱硬化型および/または光硬化型である特許請求の範囲第8項または第12項または第13項記載の回路接続用接着フィルム。
15. フィルムの厚みが1～300 μm である特許請求の範囲第8項または第12項乃至第14項のいずれかに記載の回路接続用接着フィルム。
16. JIS K-61714による全光線透過率が40%以上である特許請求の範囲第8項

物およびこの組成物よりなる接着剤フィルムさらにこの材料を用いた回路の接続方法に關する。
(従来の技術および問題点)

従来より集積回路類の配線基板への接続、表示素子類と配線基板への接続、電気回路とリードとの接続などのように接続端子が細かいピッチで並んでいる場合の接続方法として、ハンダ付や導電性接着剤などの接続部材による方法が広く用いられている。しかしながら、これらの方法においては導電回路部のみに限定して接続部材を形成しなければならないので、高密度、高精細化の進む微細回路の接続に困難をきたしていた。

最近回路接続用の接続部材について検討が加えられ、すでに特開昭51-20941号公報、特開昭51-21192号公報、特開昭55-104007号公報、等により提案されているが、これらはいずれもその基本思想は、相対峙する回路間に金属粒子等の導電材料を含む良導電性の接続部材層を設け、加圧または加熱加

特開昭62-188184 (3)

圧手段を構じることによって、回路間の電気的接続と同時に隣接回路間に絶縁性を付与し、相對峙する回路を接合固定するといういわゆる異方導電接統材料による方法である。

しかしながらこれらの方法においては、回路間の導通は主として複數個の導電性材料、多くの場合には金属粒子の接触によって得られるものであり、金属粒子が剛直であるため粒子／粒子間あるいは粒子／回路間の接触面積が充分でなく導通の信頼性が不足していた。

また前記の導通思想と同じではあるが、初期接続信頼性の向上、あるいは、原価低減等を目的として、導電粒子あるいは絶縁性粒子を核材とし、その表面に導電層を形成した粒子を用い、異方導電接統を得ようとする試みもたとえば特開昭51-135938号公報、特開昭56-122193号公報、特開昭58-111202号公報などにみられるが、金属粒子やアルミナ、ガラスなどを核材とした場合は前記と同様に核材が剛直であるために粒子／粒子間あるい

は粒子／回路間の接触面積が充分でないため導通の信頼性が不満足であり、また核材としてプラスチックを用いるとの知見はあるものの、実用化に結びつく発明の要件が明確でなく、本発明者の追試によっても良好な長期信頼性を有する回路の接統体を得る事が出来なかった。

すなわち以上の従来技術は回路接統時の異方導電性を得ることは可能であっても、接統部の信頼性などの実用特性までは踏みこんでいない。後述するようにこれら従来技術の追試結果を第1表の比較例1〜2に示したが、満足すべき特性を得ることができなかった。

さらに接統信頼性の向上を目的として、たとえば特開昭60-140790公報に見られるように、絶縁性接合剤中に分散された金属粒子を回路間で溶融して接統することで良好な接統を得る試みもあるが、このものは金属粒子が無溶融性であるため接統条件巾が狭く、接統時の信頼性が不満足である欠点を有している。すなわち金属の融点近傍では良好な接統が得られて

も、融点以上では従来のハンダ付と同様に金属粒子の溶融により簡単に流動変形して隣接回路間を連結するために隣接回路間で絶縁性がなくなり（リークという）細から回路ビッチに対応出来ない欠点を有し、また融点以下では金属の溶融が起らない為に、前記したように剛直な金属粒子が回路間に存在するだけであり初期の導通性を得ることが可能であっても、長期の接統信頼性とくにたとえば冷熱衝撃試験における信頼性が不満足であった。また融点近傍においてもその溶融状態を制御することが無伝導性などの点から難かしく、たとえば得られた良好な回路接統部においても、接合剤と金属粒子との熱膨張率差が大きいことから、前記した耐熱衝撃性が低い欠点を有していた。またこれらの熱溶融性金属は液晶をはじめとしてディスプレイ用途に多用される透明導電ガラス電極等に対してはその表面張力が極めて大きいことから回路面に対する濡れ性がなく、良好な接統を得ることが出来なかった。

本発明者らは先に回路接統用に極めて良好な導電性接層シートおよび接統部材を提案したが、本発明はさらに上記欠点を改良し接統時および接統後の信頼性の高い接統を可能とする手段および方法について鋭意検討の結果、本発明に至ったものである。

（問題点を解決するための手段）

すなわち本発明は、絶縁性の接合剤成分と導電性粒子とよりなる回路接統用の接合剤組成物において、導電性粒子として高分子核材のほゞ全表面が導電性の金属薄層により被覆された平均粒径 $0.5 \sim 300 \mu\text{m}$ 、粒子形状としての径径比 $0.5 \sim 1.0$ の導電性粒子を前記接合剤成分中に固形分比で $0.1 \sim 15$ 体積％含有し、接合剤に対する高分子核材の熱膨張率の比が $0.5 \sim 1.5$ でありかつ弾性率の比が $1.2 \sim 0.01$ であることを特徴とする回路接統用の接合剤組成物と、この組成物の一使用形態としての厚みが $1 \sim 300 \mu\text{m}$ で全光線透過率が 40% 以上である回路接統用の接合剤フィルム、さらにこの

特開昭62-188184 (4)

組成物ならびにフィルムを用いた長期接続信頼性に優れた回路の接続方法に関する。

本発明にかかる組成物ならびにフィルムの構成を図面を用いながら以下に詳しく説明すると、第1図および第2図は本発明に使用する導電性粒子を示す断面模式図であり、第1図においては高分子基材1の表面が金属2で被覆されている様子を示したものであり、第2図においては高分子基材1が中空部3を有する場合の模式図である。

本発明の高分子基材1は第1図あるいは第2図に代表される構成の物が単独あるいは複合して使用される。

ここで基材とは完全な充填体、内部が気体からなる中空体、あるいは内部に気泡部を有する発泡体など種々の構成をとることが可能である。

高分子基材1の形状はほぼ球状であることが代表的であるが、表面に凸起や凹凸があっても良く、また基材粒子が凝集した凝集粒子としても使用できる。

変性してもよい。

ここで熱硬化性の物にあっては、接着剤成分との混合等に支障のない範囲であればその硬化度は問わないものとする。

これらの単体や2種以上の複合物を用いることができるが、さらに次の点を加味して決定する。

- (1) 回路接続時の温度すなわち常温から400℃の間で100kg/cm²以下の圧力で軟化あるいは変形可能であること。
- (2) 常温付近における熱膨張率は 20×10^{-6} ~ 2×10^{-6} (1/℃) であること。
- (3) 弾性率が接着剤成分の値と略同等以上であること。
- (4) 金属被覆層との密着性の良好なこと。

ここで接続時の加圧および加熱加圧により軟化あるいは変形可能である理由は、回路接続時に導電性粒子同士あるいは導電性粒子と回路との接触面積を増加するために必要であり、常態においてのいわゆる感圧接着剤による感圧接続

高分子基材はプラスチック類またはゴム類や天然高分子類がありこれらの複合体としての混合物あるいは共重合物などでも良く、これらを主成分とし必要に応じて架橋剤、硬化剤およびその他の添加剤を用いる。これらの高分子類を例示すると、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレン、アクリロニトリル-スチレン共重合体、アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン共重合体、ポリカーボネート、ポリメタクリレート等の各種アクリレート、ポリビニルブタール、ポリビニルホルマール、ポリイミド、ポリアミド、ポリエステル、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、フッ素樹脂、ポリフェニレンオキサイド、ポリフェニレンサルファイド、ポリメタルペンテン、尿素樹脂、メラミン樹脂、ベンゾグアナミン樹脂、フェノール樹脂、ホルマリン樹脂、キシレン樹脂、フラン樹脂、ジアルキルフタレート樹脂、エポキシ樹脂、ポリイソシアネート樹脂、フェノキシ樹脂、シリコン樹脂などがあり、これらを適宜

および400℃迄の加熱を併用した感圧接続によることも可能である。400℃以上では回路基板に対して熱損傷を与える恐れがあり、本発明には適用できない。また常温貼付の場合には回路の実装耐熱性が問題となる場合があるために、より好ましくは高分子基材は100~250℃で軟化あるいは変形可能であることが好ましい。

圧力は接続を要する回路部に熱影響を及ぼさぬように、出来れば低圧が望ましく通常は100kg/cm²以下がこの種の回路接続に多用され、本発明においても準用できる。

高分子基材の熱膨張率の規定は、熱硬化時における被覆金属との密着性の点から必要であり、上限の 20×10^{-6} (1/℃) 以上では熱膨張収縮危が大きいことから金属被覆層の割れや剝離を生じ易く好ましくない。

弾性率を接着剤成分と略同等以上とする理由は、回路接続時の加圧もしくは加熱加圧下において適切な接続状態を得るために必要であり、

特開昭62-188184 (5)

この点に関してはさらに後述する。

金属被膜層と高分子基材との密着性は、高分子基材の極性や前述の熱膨張率に留意する他に、高分子基材へのプラズマやコロナ処理などの表面活性化手段、あるいは各種カップリング剤、ヤレート剤、極性付与剤などの表面処理手段を必要に応じて加えることにより、密着性を向上することが可能である。密着性が向上すると、被膜層の脱落を防止することができ良好な導電および絶縁特性を併せて得ることができる。

被膜に用いられる金属2としては各種の金属、金属酸化物、合金等が用いられるが、下記を考慮して選択される。

(1) 電気の良導体であることが必須で好ましくは比抵抗が $100 \times 10^{-8} \Omega \cdot \text{cm}$ 以下、さらに好ましくは $10 \times 10^{-8} \Omega \cdot \text{cm}$ 以下であること。

(2) 常温付近における熱膨張率が $1.0 \times 10^{-5} \sim 4.0 \times 10^{-5} (\text{1/}^\circ\text{C})$ であること。

なおここで言う比抵抗や熱膨張率は各種文献

に掲載の値を用いることが可能であり、たとえば日本機械学会発行の機械工学便覧改訂第6版、5-1~5-3頁所載の金属の物理的性質を参考とすることができる。これら(1)(2)の条件を満足する金属元素の例としては、Zn, Al, Sb, U, Cd, Ga, Ca, Au, Ag, Co, Sn, Se, Fe, Cu, Th, Pb, Ni, Pd, Be, Mg, Mnなどがあり、これらを単独もしくは複合して用いることが出来、さらに特殊な目的たとえば硬度や表面張力改良などのために他の元素あるいは化合物なども添加できる。

高分子基材1の表面上に金属2を形成する方法としては、たとえば蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法、メッキ法などの物理化学的方法や、高分子基材の合成時に少量の金属をモノマー中に分散させ、重合後のポリマー粒子表面に金属粉を吸着させたり、官能基を有する基材と金属を化学結合させたり、界面活性剤やカップリング剤などにより吸着させるなどの化学的手法による等の方法が採用できる。

被膜層の厚みは、 $0.01 \sim 5 \mu\text{m}$ が通用可能であり、好ましくは $0.05 \sim 1 \mu\text{m}$ がさらに良好であるが、この厚みは導電性粒子の粒径の $1/5 \sim 1/1000$ に入るものとする。ここで厚みに制限を設ける理由は、厚みが薄いと導電性が低下し、厚みが増すと高分子基材や接着剤成分との熱膨張収縮の差が大きくなることから温度変化に対する追随性が少なくなるためである。また金属は変形に対して薄層であることから充分に追随性を有するが、たとえば伸び率の大きな延性材料であることがより好ましい。

従来このような導電性粒子として、ガラス球(ビーズ)あるいはガラス中空球(パールン)にAg等の薄層を設けたものもあるが、これらは加熱加圧時に軟化変形することが出来ない為本発明の実施には不適である。

上記により得られた導電性粒子は平均粒径が $0.5 \sim 500 \mu\text{m}$ 、粒子の最少径に対する最大径の比が $0.05 \sim 1.0$ であるものとする。粒子径が $0.5 \mu\text{m}$ 以下では多量の導電性粒子を必要

とし、また結果的に充填粒子数が多くなるので回路との接着性が低下し、 $300 \mu\text{m}$ 以上になると粒子が大きいために隣接回路間(スペース)が導通(リーク)されるようになり被細回路の接続に適用できないことから好ましくない。リークの発生を防止するためには、接続すべき回路のスペースよりも最大粒径の小さい導電性粒子を選択することが必要であり安全率を考慮してスペース巾の $1/2 \sim 1/4$ の最大粒径の導電性粒子を用いることが好ましい。

導電性粒子の形状は前記の如く最少径に対する最大径の比が $0.05 \sim 1.0$ 程度とする。

この範囲外では粒子が余りにもフレック状となり、本発明の目的とする回路間の導通性と隣接回路間の絶縁性を同時に得るには不向きであり、また回路との接着性も低下する傾向が強くなる。

この範囲を満たす例としては、ほぼ球状であるものが化表的であるが上記条件を満たすものであれば特に限定されない。また粒子表面に突

特開昭62-188184 (6)

起物や凹凸があっても良く、また単一粒子に限定されずに凝集体からなる粒子であっても良い。

粒子径は全体的な平均粒径をとるものとし、粒子の形状や粒子径の測定は、たとえば走査形電子顕微鏡などによる方法が便利である。平均粒径 D は次式で求めるものとする。

$$D = \sum nd / \sum n$$

ここに、 n は d なる粒径の粒子の数を示す。

導電性粒子が球状であると、接続時の加熱加圧により粒子相互あるいは粒子と回路面との接触を得やすく高導性を得やすい。

導電性粒子は接続部材の厚み方向に単層で存在しても良いし、複数個配列あるいは凝集した構造であっても良い。

接着剤中に占める導電性粒子は0.1~15体積%が適当である。0.1体積%以下では満足する導電性が得られず、15体積%以上では隣接回路との絶縁性が低下し接着剤フィルムの透明性も得られない。上記理由からより好ましい添加量は、0.5~10体積%である。

エポキシ、ポリアミド、ポリウレタン、天然ゴム、シリコン系ゴム、ポリクロロブレン等の合成ゴム類、ポリビニルエーテルなどが適用可能であり、単独あるいは2種以上併用して用いられる。

粘着付与剤としては、ジシクロペンタジエン樹脂、ロジン、変性ロジン、テルペン樹脂、キシレン樹脂、テルペンフェノール樹脂、アルキルフェノール樹脂、クマロンインデン樹脂等があり、これらを必要に応じて、単独あるいは2種以上併用して用いる。粘着性調整剤としてはたとえばジオクタルフタレートをはじめとする各種可塑剤類等が代表的である。

架橋剤はポリマーの架橋力を高めることが必要な場合に用いられ、ポリマーの官能基と反応する多官能性物質であり、たとえばポリイソシアネート、メラミン樹脂、尿素樹脂、フェノール樹脂、アミン類、酸無水物、過酸化物等があげられ、さらに光硬化性の場合の増感剤としてベンゾフェノン、ベンゾキノン等でも良い。

本発明で用いられる接着剤としては、基本的には絶縁性を示す通常の接着性シート類に用いられている配合が適用可能であり、常温付近の熱膨張係数が 5×10^{-4} ($1/^\circ\text{C}$)以下のものから選択される。通常の接着シート類に用いられる配合は架橋力を付与するポリマーと、その他必要に応じて用いる粘着付与剤、粘着性調整剤、架橋剤、老化防止剤、分散剤等からなっている。

これらポリマー種としては、エチレン酢酸ビニル共重合体、エチレン酢酸ビニル共重合体変性物、ポリエチレン、エチレンプロピレン共重合体、エチレンアクリル酸共重合体、エチレンアクリル酸エステル共重合体、エチレンアクリル酸塩共重合体、アクリル酸エステル系ゴム、ポリイソブチレン、アタクチックポリプロピレン、ポリビニルブタール、アクリロニトリルブタジエン共重合体、スチレンブタジエンブロック共重合体、スチレンイソブレンブロック共重合体、ポリブタジエン、エチレンセルロース、フェノキシ、ポリエステル、

老化防止剤は、ポリマーバインダの熱、酸、光等に対する安定性を高めることが必要な場合に用いるものでたとえば金錯石ケン類を代表とする安定剤や、アルキルフェノール類などの酸化防止剤、ベンゾフェノン系、ベンゾトリアゾール系などの紫外線吸収剤等があり、やはり必要に応じて単独あるいは2種以上併用して用いられる。

分散剤は、導電性粒子の分散性向上のために用いる場合がある。この例としてはたとえば界面活性剤があり、ノニオン系、カチオン系、アニオン系、両性のうち1種あるいは2種以上併用して用いることが出来る。

上記接着剤成分は高分子核材との熱膨張率の比(接着剤成分/高分子核材)が0.5~1.5であり同じく弾性率の比(接着剤成分/高分子核材)が1.2~0.01であるものとする。ここで熱膨張率は常温付近の熱膨張率、弾性率は常温付近の引張弾性率を意味するものとする。

上記範囲の規定は回路接続部の接続信頼性や

特開昭62-188184 (7)

長期信頼性の点から必要である。熱膨張率の規定範囲外では、高分子基材と接着剤成分との熱膨張収縮差が大きくなり接着剤の熱膨張による回路の膨張に導電粒子が追いつかず導電粒子と回路との間の接触不良が発生するので好ましくない。同じ理由から好ましい範囲は0.6~9である。高分子基材の弾性率の比を接着剤成分と略同等以上とする理由は、回路接続時における信頼性の向上から必要であり、この比が0.01以下では高分子基材の弾性が高過ぎるために回路の接続時に導電性粒子相互および回路との接触が不十分な点接触となり易く導電性が不満足となり、この比が1.2以上であると接着剤成分に較べて高分子基材の変形、流動が起り易いため、隣接回路間に絶縁性が無くなり(リーク)微細回路に対して適応できなくなり、また接続時の条件巾が小さくなる。このような理由から好ましい範囲は1.0~0.02である。

本発明にかゝる接着剤組成物の製造方法としては、ポリマおよびその他必要に応じて使用す

セベレータ上に前記手段により接続部材層を形成後連続的に巻重しても良いし、接着層の粘着性が無い場合においてはセベレータを用いずに巻重することも可能であり、さらに接着剤の補強用として、たとえば不織布等の芯材を用いることも可能である。

上記製法において接着剤組成物中に溶剤あるいは分散媒を含む場合においては溶剤乾燥時の厚み方向の体積収縮現象を利用して導電性粒子が厚み方向により密な配列を有する接着剤フィルムを得ることが可能であり、又無溶剤下のホットメルト施工においては、製造時の溶剤による環境汚染を防止することができる。

接着剤フィルムの厚みは、導電性粒子の粒径および接続部材の特性を考慮して相対的に決定するが、1~300 μm の厚みが好ましい。

1 μm 以下では十分な接着性が得られず、300 μm 以上では十分な導電性を得る為に多量の導電性粒子の混合を必要とすることから実用的でない。この理由からさらに好ましい厚みは

る添加剤からなる接着剤組成物を溶剤に溶解するか懸濁状に媒体中に分散しあるいは熱溶解させて液状とした後に導電性粒子をボールミルや攪拌装置などの通常の分散方法により混合し、導電性粒子混合接着剤組成物を得る。

溶剤を用いる場合については、高分子基材上に金属層の形成された導電性粒子は溶剤に対する溶解性がほとんどないため溶剤を用いることも可能であるが、接着剤を溶解し高分子基材を溶解しない溶剤を選択することがさらに好ましい。この手段としては、たとえば接着剤をエマルジョン化して水媒体中に導電性粒子を分散することもよい方法である。

上記導電性粒子混合接着剤組成物は、接続を要する一方あるいは双方の回路上にスクリーン印刷やロールコート等の手段を用いて直接回路上に接着剤層を形成しても良く、またフィルム状の連続長尺体とにもよい。連続長尺体としての接着剤フィルムを得るには紙やプラスチックフィルム等が必要に応じて剥離処理を行なった

3~100 μm である。

このようにして得られた接着剤フィルムはかなりの透明性を有する。接着剤フィルムが透明性を有すると製造時の品質管理が行い易く外観上の見映えも良い。また表示素子等の接着等においては、被着体を選択できる構成をとることも可能となる。

得られた接着剤フィルムを用いて回路を接続する方法としては、たとえば回路に接着剤フィルムを仮貼付した状態でセベレータのある場合にはセベレータを剥離し、あるいは接着剤組成物を回路上に塗布し必要に応じて溶剤除去後の状態で、その面に他の接続すべき回路を無プレスあるいは加熱ロール等で貼付ければよい。

第3図および第4図はかかる方法により回路を接続した状態を模式的に示したもので、無と圧力によって接着剤4が軟化流動するとともに導電性粒子8も軟化変形し相互に接触するので両回路5,6間の導通接合が可能となる。

第5図は回路5,6間に導電性粒子8が複数な

特開昭62-188184 (8)

いしそれ以上存在する場合の例で粒子表面の金属層同士で接触して導電路を形成するので高導電性が得られる。

接続時の加熱加圧に際し、被覆金属は薄層であるために高分子基材の変形に充分追随可能であり、もしや変形に追随できずに金属層にヒビ割れ等の欠陥が生じて、回路あるいは、他の粒子との接触により導電路は保持できる。

最適な接続状態を得るには接続前の接層剤組成物(フィルム)厚み T に対する接続後の回路間の厚み t を、 $t/T = 0.02 \sim 0.95$ の範囲とすることが必要がある。このとき、接続前の粒径 D なる導電性粒子が厚み方向に単粒子状で存在している場合には接続後の粒径を d として d/D の比を t/T と同様に用いることができる。 t/T が 0.02 以下では導電性粒子が破壊して金属薄片が脱落し易くなりまたこの比が 0.95 以上では回路あるいは導電性粒子との十分な面接触が得られないことから、満足すべき接続信頼性を得ることが出来ないため本発明の実施には

ことが出来、良好な導電性と信頼性を得ることができる。一方絶縁回路部における粒子には、回路間の粒子ほどには圧力がかからない為、導電性粒子の粒径や添加量を選択することと合わせて導電回路との絶縁性は十分に保たれる。

さらに高分子基材は軟化変形域を、その材料の熱的特性の選定あるいは組み合わせにより、任意に設定することが可能である為接続時の条件巾を広くとることができる。たとえば一定融点を示さない非晶性の高分子を基材とした場合やゴム状領域の広い架橋物の場合には、特にその軟化流動域(ガラス状〜ゴム状〜液状域まで)が広く、回路接続時の条件(温度、圧力、時間)も広くとることが可能で接続時の信頼性が著しく向上しあわせて接続作業性も良好となる。

また高分子基材は軟化変形の度合を、その接続条件により任意に設定することが可能であり、接続状態を管理することが可能となる。たとえば接続部における導電性粒子の粒径が不一致の場合でも第4図のようにその接続条件を管理す

不適である。

上記理由から t/T のより好ましい範囲は $0.10 \sim 0.90$ である。

この最適な接続状態を簡単に得る方法として、接続操作時に回路間に所望厚みの剛体よりなるスペーサを挿入したり、接層剤組成物あるいは接層剤フィルム中に導電性粒子より小さな所望の接続後の回路間厚みに等しいスペーサ粒子を混入すれば、本発明の導電性粒子は容易に変形可能であるために所望の厚みを簡単に得ることも可能である。

(作用)

本発明にかかる接層剤組成物においては、高分子基材に被覆された金属は接続時の加圧あるいは加熱加圧により、導電性粒子相互あるいは導電回路部と接触して導電路を形成する。

この時、高分子基材は加圧あるいは加熱加圧による接続操作時に軟化あるいは変形可能であるために回路面あるいは導電粒子相互間で押付けられるように適度に変形し接触面積を大きく保つ

ること、大きな導電性粒子 B を小さな導電性粒子 B' の大きさかそれ以上に圧着して接続することが可能で導電性粒子は導通に有効に寄与できる。これに対して従来の金属粒子の場合は第5図に示すように、大きな導電性粒子 B がスペーサ状に作用し、他の小さな粒子 B' は導通に寄与しないために導通点数が減少し接続信頼性が低かった。

回路間において適度に押しつけられた導電性粒子は、高分子基材が接層剤成分と熱膨張率が近似していることから、接続後の温度変化に対する追随性が高く、耐熱衝撃性に代表される長期接続信頼性に優れる。

この様子を第6図の接続模式図で説明する。本発明になる回路接続部に温度変化を与えた場合、回路5,6の材料に比べて相対的に熱膨張率の大きな接層剤4による y 軸方向の熱膨張収縮により回路5,6間にはお互いに離れようとする応力が働くが、高分子基材1と接層剤4は熱膨張係数が類似しており、金属2は十分に深い

特開昭62-188184 (9)

ことから、回路5,6の厚み方向に充分追随変形が可能であり、回路の導通接続は良好に保たれる。

このとき接層剤4は、x軸方向にも熱膨張収縮しようとするが、金属回路に取ってその弾性率は相対的に充分小さく実質的に変形が抑制され、また弾性率が小さい事から熱応力は容易に緩和してしまう。

(実施例)

以下本発明を実施例によりさらに詳細に説明する。

実施例1〜9および比較例1

(1) 接層剤組成物の作製

表面がAuでメッキ被覆された粒径および被覆層厚みの異なるポリステレン樹脂の球状粒子を、ステレンブタジエンブロック共重合体(MI2.6)100部と軟化点120℃のテルペン系粘着付与剤40部およびトルエン200部よりなる接層剤溶液中に添加量を変えて配合し、この配合物を超音波分散して導電

評価結果を第1表に示したが、各実施例において接層シートは透明性を有しているため、透過光の助けにより回路の位置合せが容易であった。特性を第1表に示した。各実施例において得られた接続体は良好なる導通抵抗および隣接回路との絶縁性を示し信頼性試験後もその特性は良好であった。

なお比較例1においては導電性粒子の充填量が20体積%と多い場合であるが、回路の位置合せは容易であったが回路接続後にリワークが発生した。

実施例10〜13

実施例1〜9と同様であるが、導電性粒子の種類を変えた。すなわちエポキシ球状粒子を高分子基材とし、実施例10〜11においては0.2μmの厚みのCu層を設け、その上にさらに0.2μm厚みのNi層を設けて金属の複合層とした。

実施例12〜13においては被覆層は厚み0.2μmのAu層とした。接層剤成分および評価は

性粒子混合の接層剤組成物を得た。

(2) フィルムの作成

この接層剤組成物をパーコータを用いて、セパレータ(シリコン処理ポリエステルフィルム)上に塗布し、100℃で厚みに応じて5分間〜30分間の乾燥により溶剤を除去して接層剤フィルム化した。

(3) 評価

ライン巾0.1mm、ピッチ0.2mm、厚み35μmの回路を有する全回路幅100mmのフレキシブル回路板(FPC)に、接層巾3mm、長さ100mmに切断した上記接層フィルムを載置して120℃〜10kg/cm²5秒の加熱加圧により仮貼付して接続部材付FPCを得た。

そのあとセパレータを剥離して、他の同一ピッチを有するFPCをセパレータ剥離面に載せて顕微鏡でFPC回路の位置合せをした後、温度150℃、圧力20kg/cm²で20秒間加熱加圧して回路を接続した。

は実施例1〜9と同様である。評価結果を第1表に示したが、各実施例とも良好な初期および信頼性評価後の特性を有していた。

なお実施例10〜11のフィルムは導電性粒子が厚み方向に連続的に堆積している様子が確認できた。

この現象はフィルム作製時の溶剤乾燥工程においてフィルム厚み方向に接層剤成分が優先的に収縮したことによると思われる、異方導電性の材料としては好ましい形態であり、導電性粒子径がフィルム厚みに比べて相対的に小さい場合に発生しやすい現象である。

比較例2〜4

実施例12と同様にフィルムを作成し評価したが、導電性粒子の種類を変えた。すなわち導電性粒子としてAu被覆のアトマイズNi球、Ag被覆ガラス球、および融点150℃のベンダ粒子をそれぞれ使用した。

これらの結果を第1表に示したが、いずれも初期の抵抗は良好であるが、信頼性試験におい

特開昭62-188184 (10)

て導通不良（オープン）が発生した。

以上の比較例1～3における回路接続部の断面を走査型電子顕微鏡で観察したところ、導電性粒子の変形は見られず、回路に点状に接触していた。

以下、

第 1 表

NO	導 電 性 粒 子					組成物およびフィルム		回路の接続特性			
	被覆層の 厚み ④ (μm)	平 均 粒子径⑤ (μm)	⑧/⑤	粒 径 比	含有量 (体積%)	厚 み (μm)	全光線 透過率 (%)	導 通 抵 抗⑨		絶 縁 抵 抗⑩	
								初 期	信頼性 評価後	初 期	信頼性 評価後
実施例-1	1.0	50	0.02	0.90	1	100	41	0.85	1.20	10^8	10^8
2	"	"	"	"	"	50	65	0.48	0.75	10^{11}	10^{11}
3	0.1	5	0.02	0.70	0.1	20	85	0.80	1.10	10^{11}	10^{11}
4	"	"	"	"	0.5	15	82	0.48	0.52	10^{11}	10^{11}
5	"	"	"	"	5	10	70	0.50	0.48	10^{11}	10^{11}
6	"	"	"	"	10	7	57	0.21	0.50	10^{11}	10^{11}
7	"	"	"	"	15	5	52	0.08	0.08	10^8	10^8
8	"	0.5	0.20	0.50	2	3	86	0.06	0.08	10^{11}	10^{11}
9	"	"	"	"	"	1	88	0.02	0.03	10^{11}	10^{11}
比較例-1	"	"	"	"	20	0.7	75	0.02	—	リーク	—
実施例-10	0.4	3	0.13	0.60	2	15	76	0.52	0.50	10^{11}	10^{11}
11	"	"	"	"	"	30	62	0.44	0.62	10^{11}	10^{11}
12	0.2	25	0.007	0.64	4	25	45	0.50	0.74	10^{11}	10^{11}
13	"	"	"	"	"	25	41	0.72	0.80	10^{11}	10^{11}
比較例-2	0.2	25	0.007	0.60	4	25	48	1.20	オープン	10^{11}	—
3	"	"	"	0.95	"	"	45	1.42	オープン	10^{11}	—
4	—	"	—	0.52	"	"	40	0.85	オープン	10^{11}	—

特開昭62-188184 (11)

実施例14～16

ニトリルブタジエンゴム（アクリロニトリル量33%、 μ - π 粘度78）の球状粒子にAを蒸着被覆して導電性粒子を得た。

この導電性粒子を第2表に示すようにそれぞれ硬化系を変えたアクリル系粘着剤（官能基としてアクリル酸5%含有、 $T_g = -40^\circ\text{C}$ 、粘度1000 cps/20%トルエン液、 25°C ）中に混合分散し、常温でFPCに仮貼付した後、FPCと同ピッチの回路を有する厚み0.5mmの透明導電ガラスに $25^\circ\text{C}-5\text{kg}/\text{cm}^2$ 2秒間の条件で2本のロール間で圧着した。さらにその後第2表に示した後硬化を行ない、実施例1～9と同様な評価を行なった結果を第3表に示す。

第2表

NO	硬化系	硬化剤（硬化促進剤）	後 硬 化
実施例14		多官能芳香族ポリイソシアネート 3部	なし
15		同上 3部	熱 硬 化 $120^\circ\text{C}-1\text{hr}$
16		ベンゾフェノン 5部	紫外線硬化 $100\text{mW}/\text{cm}^2, 20\text{秒}$

材料の組み合わせおよび評価結果を第3表に示した。

高分子基材への被覆はメッキによりAgを0.2 μm 形成した。高分子基材としては粉末ポリイミドを使用した。またポリエステルは熱可塑性ポリエステル（分子量約20000、 $T_g 7^\circ\text{C}$ ）であり、NBRは実施例14～16と同材料である。接着剤成分としてのアクリルゴムは実施例14～16と同材料であり、ポリエステルは高分子基材に用いた熱可塑性ポリエステルである。

なお実施例19においてはピッチ0.4mm（回路巾0.2mm）のFPC（Cu厚み3.5 μm ）および透明導電ガラスを使用した。

これらの評価は実施例14～16と同様に行なったが、実施例18～19および比較例5においては接着剤成分の接着性を得るために $170^\circ\text{C}-20\text{kg}/\text{cm}^2$ 20秒と温度を上げて接続した。

結果を第3表に示したが、各実施例とも良好

実施例14～16においては、感圧性の粘着剤を接着剤主成分としたので、常温における回路接続が可能でありまたロール間での圧着接続が可能なるに接続を短時間で行うことが可能であった。

実施例14の信頼性試験においては抵抗値の上昇が比較的大きかったが、実用上問題のない範囲であった。

実施例15～16は接続部を熱あるいは紫外線により架橋硬化させることで耐熱性を付与したために、実施例14に較べ信頼性試験後の抵抗値の上昇は少なかった。

なお実施例14～16において抵抗値のレベルが前述の実施例1～13に較べて高い理由は透明導電ガラスの回路抵抗を含むためであり、また実施例16はガラス回路側より紫外線を照射した。

実施例17～19および比較例5

高分子基材および接着剤成分の物性値を変え、るために各材料の組み合わせを変えて検討した。

な特性であった。実施例19においては高分子基材と接着剤成分を同一材料としたので熱膨張収縮時の追随性が特に良好であり信頼性試験において特に優れた特性を示した。

なお比較例5は接着剤成分に較べて高分子基材の熱膨張率が大きくさらに弾性率も低い組み合わせであるが接着剤成分を流動させるために加熱したところ、高分子基材の流動性が大きいためにリークが発生した。

実施例20～21

導電性粒子として平均粒径300 μm （最大粒径350 μm ）の粒子を用い、接着剤組成物およびフィルムの製造を変えた。

すなわち高分子基材としてエポキシ粒子を用い、Niを無電解メッキで形成し接着剤成分として実施例18に用いたポリエステルを使用した。

実施例20においては接着剤組成物を 190°C に加熱し加熱ロール間より流延してホットメルトコーティングによりフィルムを作製し、

特開昭62-188184 (12)

FPC上に仮貼付をした。

実施例-21においては実施例1~9と同様に溶剤（この場合はメチルエチルケトン30%溶液）に溶解した接着剤組成物をFPOの回路面にシルクスクリーン印刷によりFPCに直接塗布し溶剤を乾燥して接着剤組成物付きのFPCを得た。

なお実施例20~21においてはピッチ1.27mm（回路巾0.635mm、回路厚み35μmのCu箔）のFPCを用いた。このFPCと同一ピッチの透明導電ガラスを接脱（170℃-30kg/cm²-20秒）したときの特性を第3表に示す。

実施例20、21ともに良好な特性を有していることがわかる。実施例20においては溶剤を使用しなかったため、作業環境が良好であり、実施例-21においては回路上に直接塗布したので回路接脱時の仮貼付操作が不要であった。また接着剤組成物層のみの全光線透過率の測定は不可能であったが、FPCに仮貼付後の実施

例-21と同様な透明性を有しており、回路の位置合せは簡単であった。

以上の実施例および比較例に用いた高分子基材および接着剤成分の材料の組み合わせと各材料の物性値（熱膨張率と弾性率）の関係を第4表にまとめた。第4表によれば接着剤成分に対する高分子基材の熱膨張率の比が0.66~0.93でかつ弾性率の比が0.02~1.2のものが以上述べてきたように良好な結果を示した。

以下各表

第 3 表

NO	導 電 性 粒 子						組成物およびフィルム			回路の接続特性			
	材 質	被覆層の厚み④ (μm)	平 均 粒子径⑤ (μm)	②/⑥	粒 径 比	含 有 量 (体積%)	接着剤 成分の 材 質	厚 み (μm)	全光線 透過率 (%)	導通抵抗Ω		絶縁抵抗Ω	
										初 期	信頼性 評価値	初 期	信頼性 評価値
実施例-14	ニトリルブタ ジエン ゴム	0.2	20	0.01	0.3	2	アクリルゴム	30	60	5.2	4.0	10 ¹¹	10 ¹¹
15	"	"	"	"	"	"	"	"	"	6.0	1.2	10 ¹¹	10 ¹¹
16	"	"	"	"	"	"	"	"	"	5.4	8	10 ¹¹	10 ¹¹
実施例-17	ポリイミド	0.2	50	0.004	0.06	1	アクリルゴム	50	65	5.0	10.0	10 ¹¹	10 ¹¹
18	"	"	"	"	"	"	ポリエステル	"	65	4.5	7.2	10 ¹¹	10 ¹¹
19	ポリエステル	"	100	0.002	0.25	"	ポリエステル	100	42	4.2	4.5	10 ¹¹	10 ¹¹
比較例-5	ニトリルブタ ジエン ゴム	"	20	0.01	0.3	"	"	50	62	4.6	—	リーク	—
実施例-20	エポキシ	0.3	500	0.001	0.52	0.3	ポリエステル	500	41	1.8	2.0	10 ¹¹	10 ¹¹
21	"	"	"	"	"	0.3	"	"	—	1.8	2.1	10 ¹¹	10 ¹¹

特開昭62-188184 (13)

第 4 表

NO	高 分 子 核 材			接 着 剤 成 分			比 率	
	材 質	熱膨張率 $\alpha_1 (\times 10^{-5}/^{\circ}\text{C})$	弾性率 $E_1 (\text{kg}/\text{cm}^2)$	材 質	熱膨張率 $\alpha_2 (\times 10^{-5}/^{\circ}\text{C})$	弾性率 $E_2 (\text{kg}/\text{cm}^2)$	熱膨張率の比 α_2/α_1	弾性率の比 E_2/E_1
実施例 1~9	ポリステレン	8.5	520	スチレンブタジエン ブロックポリマー	12.2	140	1.44	0.44
・ 10~15	エポキシ	6.0	250	同上	・	・	2.03	0.56
比較例-2	(N1)	1.5	21×10^3	同上	・	・	8.13	6.7×10^{-2}
3	(ガラス)	0.55	7×10^3	同上	・	・	3.49	0.02
実施例-14	ニトリルブタジエン ゴム	18.2	10	アクリルゴム	25	8	1.37	0.80
15	同上	・	・	・	15	9	0.82	0.90
16	・	・	・	・	12	12	0.66	1.20
実施例 17	ポリイミド	2.8	400	アクリルゴム	25	8	8.95	0.02
18	・	・	・	ポリエステル	8.6	220	3.07	0.55
19	ポリエステル	8.6	220	ポリエステル	・	・	1.0	1.00
比較例 5	ニトリルブタジエン ゴム	18.2	10	ポリエステル	・	・	0.47	2.20

実施例 22~25

実施例-11で得たフィルムを用いて実施例-14と同様な回路 (FPC/透明導電ガラス、ピッチ0.2mm) の組み合わせで、接続時の条件による影響をみた。結果を第5表に示したが温度で130~180℃、圧力5kg/cm²~50kg/cm²、時間5秒~50秒と広範囲の接続条件で良好な結果を得た。このときの接着剤フィルム厚みの接続前後の比率は0.02~0.50であった。

実施例22~23の場合には接続回路間において導電性粒子が数個フィルム厚み方向に連なり変形圧縮し回路と接触していた。

実施例-24の場合は接続回路間において導電性粒子の平均粒子径が等しい厚みである3μmまで圧縮され回路との接触点数および面積ともに大巾に増加しており実施例-25の場合はその粒子がさらに充分に変形圧縮され回路との接触面積が増加した。

各実施例において導通抵抗、絶縁抵抗ともに良好な初期特性と、信頼性試験後ほとんど変

抗上昇のない良好な回路接続を得ることが可能であった。

実施例 26~32

実施例-12で得たフィルムを用いて、実施例-22~25と同様な回路 (FPC/透明導電ガラス) の組み合わせで、接続時の条件による影響をみた。結果を第5表に示したが、実施例22~25と同様に広い接続条件中において信頼性の高い接続を得ることが可能であった。

実施例-26~32においてはフィルム厚みと導電性粒子径が等しいために、回路間において単粒子状で変形していた。この厚みの変化比は0.30~0.90であった。

比較例-6~12

比較例-4で得たフィルムを用いて、実施例26~32と同様な評価を行ない、結果を第5表に示した。

接続時の温度がハンダ粒子の融点150℃より低い場合には熱衝撃試験における信頼性が低く、180℃と融点より高い接続温度の場合に

特開昭62-188184 (14)

はハンダ粒子は溶融し隣接回路間にまたがりリークを発生した。ハンダ粒子の融点と同じの150℃で接続の場合には、時間あるいは圧力が低い場合は信頼性が低く、過剰であるとリークの発生がみられた。最適な接続条件は非常に狭い範囲にあるものと見られる。

以下省略

第 5 表

NO	接 続 条 件			厚 み の 変 化			導 通 抵 抗 値		絶 縁 抵 抗 値	
	温 度 (℃)	圧 力 (kg/cm ²)	時 間 (秒)	接続前 (μm)	接続後 (μm)	接続前後 の比	初 期	信頼性 試験後	初 期	信頼性 試験後
実施例-22	130	20	5	30	15	0.50	5.0	7.0	10 ¹¹	10 ¹¹
“ 23	150	5	20	“	6	0.20	3.5	4.0	10 ¹¹	10 ¹¹
“ 24	“	50	“	“	3	0.10	2.5	3.5	10 ¹⁰	10 ¹⁰
“ 25	180	50	50	“	0.6	0.02	2.0	3.0	10 ⁹	10 ⁹
実施例-26	130	20	20	30	27	0.90	7.2	20	10 ¹¹	10 ¹¹
“ 27	150	5	“	“	25	0.83	6.0	15	10 ¹⁰	10 ¹⁰
“ 28	“	20	5	“	24	0.80	6.0	17	10 ¹¹	10 ¹¹
“ 29	“	“	20	“	18	0.60	5.0	16	10 ¹¹	10 ¹¹
“ 30	“	“	50	“	12	0.40	4.5	12	10 ¹¹	10 ¹¹
“ 31	“	50	20	“	15	0.50	3.5	10	10 ¹¹	10 ¹¹
“ 32	180	20	“	“	9	0.30	3.5	10	10 ¹⁰	10 ¹⁰
比較例-6	130	20	20	30	30	1.00	10	オープン	10 ¹⁰	—
“ 7	150	5	“	“	30	“	8.0	オープン	10 ¹⁰	—
“ 8	“	20	5	“	30	“	7.5	オープン	10 ¹⁰	—
“ 9	“	“	20	“	29	0.97	6.2	オープン	10 ¹⁰	—
“ 10	“	“	50	“	5	0.10	6.0	—	リーク	—
“ 11	“	50	20	“	6	0.20	5.2	—	リーク	—
“ 12	180	20	“	“	6	0.20	5.0	—	リーク	—

特開昭62-188184 (15)

以上の第1, 3, 5図の評価における測定条件を以下に示す。

- (1) 導通抵抗は、接続した2枚の回路の対向電極間の抵抗をマルチメータにて測定(接続面積 $0.1\text{mm} \times 3\text{mm}$)。 $10^5 \Omega$ 以上はオープンとした。
- (2) 絶縁抵抗は、接続した2枚の回路の隣接回路間の抵抗をハイメグオームメータにて測定。 $10^5 \Omega$ 以下はリークとした。
- (3) 信頼性は、接着剤フィルム等により接続した2枚の回路を $-40^\circ\text{C}-50^\circ\text{C}/100^\circ\text{C}-50^\circ\text{C}$ の冷熱衝撃を1サイクルとして100サイクル処理後に抵抗を測定して初期抵抗と比較することで評価した。冷熱衝撃試験は、短期間の評価で長期寿命を推定する最も信頼性の評価法であり、実用試験として最も重視される試験方法である。
- (4) 全光透過率はJIS K-6714に準拠して日本電色工業製デジタル測度計NDH-20Dにより測定した。

細回路の接続に適用できる。

さらに高分子基材の軟化変形域は、一定融点を示す金属に比べて十分に広いために、接続作業時の条件巾を広くとることが可能となり接続時の信頼性が向上する。

また高分子基材接着剤成分と熱膨張係数が近似していることから接着剤の熱膨張により接続回路間隔が大きくなっても、導電性粒子の熱膨張により粒子と回路との接触状態が良好に保たれるので長期接続信頼性に優れる。

さらに接続状態の管理を厚み測定といった比較的簡単な方法で行うことが可能であり、接着剤フィルムは透明性を有しているので微細回路の位置合せを透過光の助けをかりて簡単にこなせるなどの利点を有している。また導電性粒子は金属を有効利用しており省資源上からもきわめて有意味である。

4. 図面の簡単な説明

第1図および第2図は本発明に係る導電性粒子の模式断面図、第3図および第4図は本発明

- (5) 熱膨張率および弾性率の測定試料は、厚さ約 $500\mu\text{m}$ のシートを加熱プレスあるいは熱反応性の系にあっては溶剤除去法により作製した。この試料を用いて熱膨張率は真空炉工研製熱膨張試験機TMA-1500により、また弾性率はASTM D882-64TKに準拠して東洋ポールドウィン機製テンシロンUTM-1にて測定した。

(発明の効果)

以上詳述したように本発明になる回路接続用の接着剤組成物および接着剤フィルムおよびそれを用いた接続方法においては、高分子基材の表面に導電性を有する金属薄層を形成した導電性粒子を用いることにより、回路接続時に導電性粒子が回路面あるいは導電性粒子相互で押し付けるように適度に変形するために、接触面積を大きく保つことが出来優れた導電性と良好な信頼性が得られる。一万絶縁回路部においては、回路間の粒子ほどには圧力がかからないために、隣接回路との絶縁性は十分に保たれるので、彼

に係る接着剤フィルムを用いて回路接続した状態を示模式断面図。第5図は従来の導電性粒子を用いた回路接続部の模式断面図、第6図は本発明に係る導電性粒子を用いた回路接続部の模式断面図である。

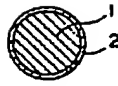
符号の説明

- | | |
|-------------|---------|
| 1 高分子基材 | 2 金属 |
| 3 中空部 | 4 接着剤 |
| 5 回路 | 6 回路 |
| 7 絶縁性基板 | 8 導電性粒子 |
| 9 導電性粒子(従来) | |

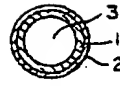
代理人 弁理士 坂 瀬 雅



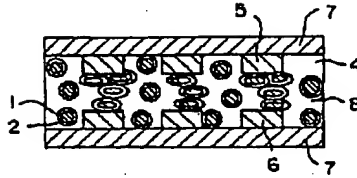
特開昭62-188184 (16)



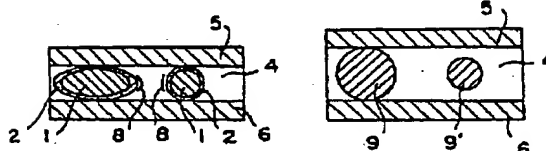
第1図



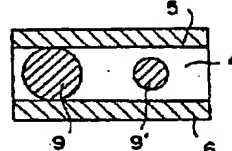
第2図



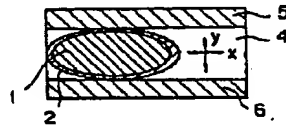
第3図



第4図



第5図



第6図

第1頁の続き

⑤Int.Cl.

H 01 B 1/22

5/16

// H 05 K 3/32

3/36

識別記号

庁内整理番号

D-8222-5E

B-8222-5E

7227-5E

B-6736-5F

A-6736-5F

⑦発明者 三 上

喜 勝

下館市大字五所宮1150番地 日立化成工業株式会社五所宮
工場内

⑦発明者 武 藤

州 輝

下館市大字五所宮1150番地 日立化成工業株式会社五所宮
工場内

⑦発明者 池 添

善 幸

下館市大字五所宮1150番地 日立化成工業株式会社五所宮
工場内

特開昭62-188184 (17)

手続補正書(終)

昭和61年8月25日



特許庁長官殿

1. 事件の表示

昭和61年特許願第31088号

2. 発明の名称

異方導電性を有する回路接続用接合部組成物および接合フィルム並びにこれらを用いた回路の接続方法

3. 補正をする者

特許出願人
名 義 (445) 日立化成工業株式会社

4. 代理人

〒163
東京都新宿区西新宿二丁目1番1号
日立化成工業株式会社内
電話東京3番-3111 (代)

氏 名 佐藤 正 一
(2530) 弁護士 佐藤 正 一

5. 補正の対象

明細書の「特許請求の範囲」の欄および「発明の詳細な説明」の欄

6. 補正の内容

(1) 特許請求の範囲を別紙の通り補正する。

を必要に応じて表面粗化や親水化処理を行ない、塩化ベツウムなどの触媒付与を行なう。

そのあと、無電解メッキ液中にて所定の温度と時間をかけて必要により撹拌等による核材の凝集防止はかりながら処理すればよい。メッキ厚みはメッキ液量や時間、温度などの制御により可能である。

メッキ液としては、たとえばニッケルの場合には、ニッケル—リン系、ニッケル—ホウ素系などでよく、還元剤としては次亜リン酸ナトリウムほう素化水素ナトリウムなどが代表的であり、銅メッキの場合には、ロッシュェル塩溶とEDTA溶が代表的であり還元剤にはホルムアルデヒド等が用いられる。

さらにメッキ法により金属の複合層を形成する場合を説明する。たとえば前記したニッケル層上に金属を設ける場合について述べると、金メッキ液はソアン化金系が一般的であり還元型金換型いずれも適用できるが、置換型金めっき法が取扱い易いことと、所望厚みからして本発

(2) 明細書第6頁第5行目に「示素子類と配線基板への接続、」とあるを「示素子類の配線基板への接続、」と訂正する。

(3) 明細書第6頁第12行目に「後述回路の接続に困難をきたし」とあるを「後述回路の場合には特に隣接回路間を接続部材が連結することがあり、その接続に困難をきたし」と補正する。

(4) 明細書第7頁第 行目に「接続と同時に」とあるを「接続と同時に」と訂正する。

(5) 明細書第8頁第1行目に「比較例1〜2」とあるを「比較例1〜4」と訂正する。

(6) 明細書第9頁第4行目に「細から回路ビッパ」とあるを「細かな回路ビッパ」と訂正する。

(7) 明細書第16頁下から3行目に「界面」とあるを「界面」と訂正する。

(8) 明細書第16頁と第17頁の間に次の文章を挿入する。

「高分子核材のメッキ方法として、無電解メッキ法による金属の形成法についての一般的な方法が適用可能であるがたとえば、高分子核材

明には好ましい。

ニッケルメッキ品を金めっき液中にて所定温度で所定時間処理すれば高分子核材/Ni/Auの複合層を有する導電性粒子を得ることができ。」

(9) 明細書第18頁第7行目に「スペースよりも最大粒径の小さい」とあるを「スペースよりも粒径の小さい」と訂正する。

(10) 明細書第19頁第10〜11行目に「回路面との接触を得やすく高導性を得やすい。」とあるを「回路面との接触が得やすく高い導電性が得やすい。」と訂正する。

(11) 明細書第20頁下から1行目に「エチレンセルローズ」とあるを「エチルセルローズ」と訂正する。

(12) 明細書第22頁下から6行目に「比接合剤成分/高分子核材が」とあるを「比(接合剤成分/高分子核材)が」と訂正する。

(13) 明細書第23頁下から6行目に「隣接回路間に絶縁性が無くなり」とあるを「隣接回路間の

特開昭62-188184 (18)

絶縁性が保持できなくなり」と訂正する。

と訂正する。

- (14) 明細書第27頁第11行目に「 $1/\tau = 0.02 \sim 0.95$ 」とあるを「 $1/\tau = 0.02 \sim 0.95$ 」と訂正する。

- (21) 明細書第41頁第4行目に「EPO」とあるを「FPD」と訂正する。

以 上

- (15) 明細書第30頁下から2行目に「高分子核材」とあるを「高分子核材1」と訂正する。

- (16) 明細書第32頁第7行目に「接着剤フィルム化した。」とあるを「接着剤フィルムを作製した。」と訂正する。

- (17) 明細書第34頁第1行目に「は実施例1〜9」とあるを「実施例1〜9と」と訂正する。

- (18) 明細書第34頁下から5行目〜5行目に「 γ トマイズNi球(比較例-2)、Ag被覆ガラス球(比較例-3)、および融点150℃のハング粒子(比較例-4)」と訂正する。

- (19) 明細書第38頁下から4行目に「含むためであり。」とあるを「含むためである。」と訂正する。

- (20) 明細書第40頁第6行〜7行目に「低い組み合わせ」とあるを「低い(第4表参照)組み合わせ」と訂正する。

(別紙)

特許請求の範囲

1. 絶縁性の接着剤成分と導電性粒子とよりなる回路接続用の接着剤組成物において、以下(1)、(2)の条件を満足する導電性粒子を0.1〜1.5体積%含有することを特徴とする回路接続用接着剤組成物。
- (1) 導電性粒子は高分子物質を核材としてそのほとんどの表面が導電性の金属薄層により被覆された0.05〜1.0のアスペクト比と0.5〜300 μm の平均粒径を有し、
- (2) 接着剤成分に対する前記核材の熱膨張率の比が0.5〜1.5であり、かつ弾性率の比が1.2〜0.01であること。
2. 核材が加圧あるいは加熱加圧により塑性変形性を有するものである特許請求の範囲第1項記載の回路接続用接着剤組成物。
3. 核材の熱膨張率が $2.0 \times 10^{-4} \sim 2 \times 10^{-3}$ ($1/\tau$)の値を有するものである特許請求の

範囲第1項または第2項記載の回路接続用接着剤組成物。

4. 核材表面に形成された金属薄層の厚みが0.1〜5 μm であり、導電性粒子の径径の $1/5 \sim 1/1000$ である特許請求の範囲第1項ないし第3項のいずれかに記載の回路接続用接着剤組成物。
5. 接着剤成分が感熱貼付性を有するものである特許請求の範囲第1項記載の回路接続用接着剤組成物。
6. 接着剤成分が感圧貼付性を有するものである特許請求の範囲第1項記載の回路接続用接着剤組成物。
7. 接着剤成分が熱硬化型および/または光硬化型である特許請求の範囲第1項または第5項または第6項記載の回路接続用接着剤組成物。
8. 絶縁性の接着剤成分と導電性粒子とよりなる回路接続用の接着剤フィルムにおいて、以下(1)、(2)の条件を満足する導電性粒子を0.1〜

特開昭62-188184 (19)

15 体積%含有することを特徴とする回路接続用接着フィルム。

(i) 導電性粒子は高分子物質を核材としてそのほぼ全表面が導電性の金属薄層により被覆された $0.05 \sim 1.0$ のアスペクト比と $0.5 \sim 300 \mu\text{m}$ の平均粒径を有し、

(ii) 接着剤成分に対する前記核材の熱膨張率の比が $0.5 \sim 1.5$ であり、かつ弾性率の比が $1.2 \sim 0.01$ であること。

9. 核材が加圧あるいは加熱加圧により塑性変形性を有するものである特許請求の範囲第8項記載の回路接続用接着フィルム。

10. 核材の熱膨張率が $20 \times 10^{-6} \sim 2 \times 10^{-4}$ ($1/^\circ\text{C}$)の値を有するものである特許請求の範囲第8項または第9項記載の回路接続用接着フィルム。

11. 核材表面に形成された金属薄層の厚みが $0.01 \sim 5 \mu\text{m}$ であり、導電性粒子の粒径の $1/5 \sim 1/1000$ である特許請求の範囲第8項ないし第10項のいずれかに記載の回路

接続用接着フィルム。

12. 接着剤成分が感熱貼付性を有するものである特許請求の範囲第8項記載の回路接続用接着フィルム。

13. 接着剤成分が感圧貼付性を有するものである特許請求の範囲第8項記載の回路接続用接着フィルム。

14. 接着剤成分が熱硬化型および/または光硬化型である特許請求の範囲第8項または第12項または第13項記載の回路接続用接着フィルム。

15. フィルムの厚みが $1 \sim 300 \mu\text{m}$ である特許請求の範囲第8項または第12項乃至第14項のいずれかに記載の回路接続用接着フィルム。

16. JIS K-61714による全光線透過率が40%以上である特許請求の範囲第8項または第12項乃至第15項記載の回路接続用接着フィルム。

17. 加圧あるいは加熱加圧により塑性変形性を

有する高分子核材のほぼ全表面を導電性の金属薄層により被覆した導電性粒子を、感熱型、感圧型、熱硬化型および/または光硬化型接着剤中に $0.1 \sim 1.5$ 体積%分散させてなる接着剤組成物または接着フィルムを相対峙する電極回路間に介在せしめ、回路間の接着剤層厚みが初期厚みの $0.02 \sim 0.95$ の範囲になるよう加圧あるいは加熱加圧することにより回路間の電氣的接続と機械的結合をおこなうことを特徴とする回路の接続方法。

18. 接続時および/または接続後に加熱および/または光照射することにより回路接続部を架橋硬化する特許請求の範囲第17項記載の回路の接続方法。

【要約】

【キーワード】異方 導電性, 回路 接続, 接着剤 組成物, 接着 フィルム, 回路, 接続 方法, 接着剤 フィルム, 接続, 高分子, 核材, 表面, 導電性, 金属 薄層, 形成, 導電性 粒子, 良好, 信頼性, 全表面, 被覆, 平均 粒径, 粒子 形状, 粒径比, 接着剤 成分, 固形分, 比, 含有, 接着剤, 熱膨張率, 弾性率, 塗布, 面, 熱プレス, 加熱 ロール, 貼着, 熱, 圧力, 軟化, 流動, 軟化 変形, 相互, 接触, 導通, 接着

【特許請求の範囲】

【請求項1】絶縁性の接着剤成分と導電性粒子とよりなる回路接続用の接着剤組成物において、以下(イ)、(ロ)の条件を満足する導電性粒子を0.1~15体積%含有することを特徴とする回路接続用接着剤組成物。(イ)導電性粒子は高分子物質を核材としてそのほぼ全表面が導電性の金属薄層により被覆された0.05~1.0のアスペクト比と0.5~300μmの平均粒径を有し、(ロ)接着剤成分に対する前記核材の熱膨張率の比が0.5~15であり、かつ弾性率の比が1.2~0.01であること。

【請求項2】核材が加圧あるいは加熱加圧により塑性変形性を有するものである特許請求の範囲第1項記載の回路接続用接着剤組成物。

【請求項3】核材の熱膨張率が $20 \times 10^{-5} \sim 2 \times 10^{-4}$ (1/℃)の値を有するものである特許請求の範囲第1項または第2項記載の回路接続用接着剤組成物。

【請求項4】核材表面に形成された金属薄層の厚みが0.01~5μmであり、導電性粒子の粒径の1/5~1/1000である特許請求の範囲第1項ないし第3項のいずれかに記載の回路接続用接着剤組成物。

【請求項5】接着剤成分が感熱貼付性を有するものである特許請求の範囲第1項記載の回路接続用接着剤組成物。

【請求項6】接着剤成分が感圧貼付性を有するものである特許請求の範囲第1項記載の回路接続用接着剤組成物。

【請求項7】接着剤成分が熱硬化型および/または光硬化型である特許請求の範囲第1項または第5項または第6項記載の回路接続用接着剤組成物。

【請求項8】絶縁性の接着剤成分と導電性粒子とよりなる回路接続用の接着フィルムにおいて、以下(イ)、(ロ)の条件を満足する導電性粒子を0.1~15体積%含有することを特徴とする回路接続用接着フィルム。(イ)導電性粒子は高分子物質を核材としてそのほぼ全表面が導電性の金属薄層により被覆された0.05~1.0のアスペクト比と0.5~300μmの平均粒径を有し、(ロ)接着剤成分に対する前記核材の熱膨張率の比が0.5~15であり、かつ弾性率の比が1.2~0.01であること。

面が導電性の金属薄層により被覆された0.05~1.0のアスペクト比と0.5~300μmの平均粒径を有し、(ロ)接着剤成分に対する前記核材の熱膨張率の比が0.5~15であり、かつ弾性率の比が1.2~0.01であること。

【請求項9】核材が加圧あるいは加熱加圧により塑性変形性を有するものである特許請求の範囲第8項記載の回路接続用接着フィルム。

【請求項10】核材の熱膨張率が $20 \times 10^{-5} \sim 2 \times 10^{-4}$ (1/℃)の値を有するものである特許請求の範囲第8項または第9項記載の回路接続用接着フィルム。

【請求項11】核材表面に形成された金属薄層の厚みが0.01~5μmであり、導電性粒子の粒径の1/5~1/1000である特許請求の範囲第8項ないし第10項のいずれかに記載の回路接続用接着フィルム。

【請求項12】接着剤成分が感熱貼付性を有するものである特許請求の範囲第8項記載の回路接続用接着フィルム。

【請求項13】接着剤成分が感圧貼付性を有するものである特許請求の範囲第8項記載の回路接続用接着フィルム。

【請求項14】接着剤成分が熱硬化型および/または光硬化型である特許請求の範囲第8項または第12項または第13項記載の回路接続用接着フィルム。

【請求項15】フィルムの厚みが1~300μmである特許請求の範囲第8項または第12項乃至第14項のいずれかに記載の回路接続用接着フィルム。

【請求項16】JIS K-61714による全光線透過率が40%以上である特許請求の範囲第8項または第12項乃至第15項記載の回路接続用接着フィルム。

【請求項17】加圧あるいは加熱加圧により塑性変形性を有する高分子核材のほぼ全表面を導電性の金属薄層により被覆した導電性粒子を、感熱型、感圧型、熱硬化型および/または光硬化型接着剤中に0.1~15体積%分散させてなる接着剤組成物または接着フィルムを相対峙する電極回路間に介在せしめ、回路間の接着剤層厚みが初期厚みの0.02~0.95の範囲になるよう加圧あるいは加熱加圧することにより回路間の電氣的接続と機械的結合をおこなうことを特徴とする回路の接続方法。

【請求項18】接続時および/または接続後に加熱および/または光照射することにより回路接続部を架橋硬化する特許請求の範囲第17項記載の回路の接続方法。

【書誌的事項の溢れ部分】

(19)【発行国】日本国特許庁(JP)

(12)【公報種別】公開特許公報(A)

(11)【公開番号】特開昭62-188184

(43)【公開日】昭和62年(1987)8月17日

(54) 【発明の名称】 異方導電性を有する回路接続用接着剤組成物および接着フィルム並びにこれらを用いた回路の接続方法

(51) 【国際特許分類第5版】

H01R 11/01

C09J 3/00 JAR

C09J 7/00 JHL

H01B 1/22

H01B 5/16

// H05K 3/32

H05K 3/36

【審査請求】 未請求

【請求項の数】 18

【全頁数】 19

(21) 【出願番号】 特願昭61-31088

(22) 【出願日】 昭和61年(1986)2月14日

(71) 【出願人】

【識別番号】 999999999

【氏名又は名称】 日立化成工業株式会社

【住所又は居所】 東京

(72) 【発明者】

【氏名】 塚越 功

(72) 【発明者】

【氏名】 山口 豊

(72) 【発明者】

【氏名】 中島 敦夫

(72) 【発明者】

【氏名】 三上 喜勝

(72) 【発明者】

【氏名】 武藤 州輝

(72) 【発明者】

【氏名】 池添 善幸